

(F5)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-284053

(P2001-284053A)

(43) 公開日 平成13年10月12日 (2001. 10. 12)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

H 0 5 B 33/20

識別記号

F I

H 0 5 B 33/20

キーワード (参考)

3 K 0 0 7

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願2000-97403(P2000-97403)

(22) 出願日 平成12年3月31日 (2000. 3. 31)

(71) 出願人 599056437  
スリーエム イノベイティブ プロパティ  
ズ カンパニー  
アメリカ合衆国, ミネソタ 55144-1000,  
セント ポール, スリーエム センター

(72) 発明者 阿部 秀俊  
山形県東根市大字若木5500番地 山形スリ  
ーエム株式会社内

(72) 発明者 荒木 好則  
山形県東根市大字若木5500番地 山形スリ  
ーエム株式会社内

(74) 代理人 100062144  
弁理士 青山 葆 (外1名)

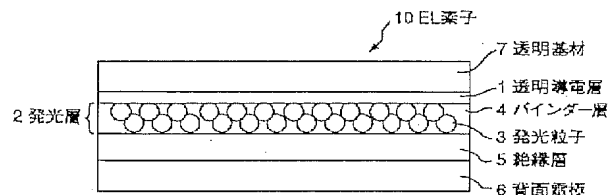
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【要約】

【課題】 発光輝度を低下させることなく、たとえば、 $50 \text{ cd/m}^2$ 以上に維持しながら、発光効率及び寿命が効果的に改良されたエレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【解決手段】 透明導電層と、透明導電層の背面に配置された、バインダーとそのバインダー中に埋設された複数の発光粒子とを含んでなる発光層と、発光層の背面側に配置された、絶縁体粒子を含んでなる絶縁層と、絶縁層の背面側に配置された背面電極とを有してなり、発光層の厚さ  $T [\mu\text{m}]$  と、前記発光粒子の最大粒径  $D_m [\mu\text{m}]$  との比率 ( $T/D_m$ ) が 1.2 以上 2.0 未満であるエレクトロルミネッセンス素子。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 a) 透明導電層と、

b) 透明導電層の背面に配置された、バインダーとそのバインダー中に埋設された複数の発光粒子とを含んでなる発光層と、

c) 発光層の背面側に配置された、絶縁体粒子を含んでなる絶縁層と、

d) 絶縁層の背面側に配置された背面電極とを有してなるエレクトロルミネッセンス素子において、

前記発光層の厚さ  $T$  [ $\mu\text{m}$ ] と、前記発光粒子の最大粒径  $D_m$  [ $\mu\text{m}$ ] との比率 ( $T/D_m$ ) が 1.2 以上 2.0 未満であることを特徴とする、エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2】 前記発光粒子は、前記絶縁層に実質的に埋設されていない、請求項 1 に記載のエレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 3】 前記発光粒子は、前記絶縁層側に配列した第 1 層と、前記透明導電層側に配列した第 2 層とからなる重層を形成し、この重層内で、前記発光粒子は相互に接触している、請求項 1 または 2 に記載のエレクトロルミネッセンス素子。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、エレクトロルミネッセンス素子（以下、「EL 素子」とも呼ぶ。）に関し、より詳しくは発光粒子とバインダーとを含んでなる塗料を塗布して形成した塗布型発光層を有する、EL 素子の改良に関する。

【0002】

【従来の技術】蛍光体等の発光粒子を樹脂バインダーに分散させて調製した塗料を塗布して形成した、塗布型発光層を備えてなる EL 素子は、たとえば、次のような文献にて知られている。特公昭 59-14878 号公報には、透明基材、透明電極層、フッ化ビニリデン系バインダーだけからなる絶縁層、フッ化ビニリデン系バインダーと蛍光体粒子とからなる発光層、上記と同一の絶縁層、および背面電極をこの順に積層してなる、EL 発光素子が開示されている。また、特公昭 62-59879 号公報には、ポリエステルフィルム、ITO 電極、シアノエチル化エチレンービニルアルコール共重合体（バインダー）と蛍光体粒子とからなる発光層、およびアルミ箔（背面電極）をこの順に積層してなる、EL 発光素子が開示されている。

【0003】一方、分散型塗料を用いない塗布型発光層 \*

$$\text{発光効率 } \eta \text{ [lm/W]} = L \times \pi \times S / P \quad (1)$$

ここで、 $P$  は消費電力（実効電力）（単位：W）、 $L$  は輝度計を用いて測定した輝度（単位： $\text{cd}/\text{m}^2$ ）、 $S$  は発光面の面積（単位： $\text{m}^2$ ）、 $\pi$  は円周率である。

【0006】発光効率が低いということは、単位実効電力当たりの輝度が低いということであり、電力効率が低

\*として「積層型発光層」を備えてなる EL 素子が知られている。たとえば、米国特許 5,019,748 号および 5,045,755 号には、(1) 透明基材の透明導電層の上に塗布された第 1 高誘電率接着層、(2) 第 1 高誘電率接着層の上に静電的に塗布された、ドライの蛍光粒子（発光粒子）を配置して形成された、ほぼ単層の（層の厚さが最も大きな蛍光粒子寸法を超えない）蛍光粒子層、および (3) 蛍光粒子層の上に塗布され高誘電率材料を含み、隣接する蛍光粒子間の隙間を充填する第 2 誘電率層の 3 層の積層体からなる、EL 素子が開示されている。上記第 2 誘電率層の表面には背面電極が直接設けられ、すなわち、この第 2 誘電率層は絶縁層として機能する。

【0004】ところが、上記いずれの公報または特許明細書にも、透明導電層に外部から電気（電圧）を供給するための端子（バス）を、ロール状 EL 素子の生産工程中に、透明基材の長さ方向に連続して延在する様に設けるための具体的な手段は何ら開示されていない。たとえば、EL 素子の大面積化の達成には、透明導電層に外部から電気（電圧）を供給するための端子（バス）を、どのような形態で設けるかが重要なポイントである。たとえば、小面積ディスプレイ用の EL 素子では、スクリーン印刷を効果的に繰り返すことにより、背面電極と電気的に接続されていないバスを透明導電層上に設けることもできる。しかしながら、上記いずれの公報または特許明細書にも、バスを長さ方向に沿って連続して延在する様に形成すること、およびその手段については何ら開示されていない。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】ところで、従来の EL 素子では、発光粒子は発光層中で実質的に単層を形成していた。すなわち、発光層の厚さ  $T$  [ $\mu\text{m}$ ] と、発光粒子の最大粒径  $D_m$  [ $\mu\text{m}$ ] との比率、 $T/D_m$  は 1.0 であった。これは、EL 素子全体の厚みを可及的に小さくし、薄型化を意図していることが主な要因であった。一方、このような構造は輝度を高める上では有利ではあったが、発光効率及び寿命（輝度半減期：Time to Half Luminescence=THL）を同時に向上させるには不利であった。たとえば、発光効率は以下に示す式 1 によって定義された値であるが、この値を 3 [ $\text{lm}/\text{W}$ ] 以上にし、かつ、寿命（輝度半減期）を 700 時間以上にすることは非常に困難であった。

【数 1】

いことを意味する。たとえば、上記積層型発光層を有する EL 素子では、分散塗料を塗布して形成した発光層を有するものと比較し、同一周波数、同一電圧の電源を接続した場合、同等もしくはそれ以上の輝度で発光する。しかしながら、発光効率と寿命はかえって低くなるとい

う問題を有していた。したがって、本発明の目的は、従来のEL素子の問題点を解決するために、発光輝度を低下させることなく（たとえば、 $50\text{ cd/m}^2$ 以上に維持）、発光効率及び寿命が効果的に改良されたEL素子を提供することにある。

#### 【0007】

【課題を解決するための手段】本発明は前記目的を達成するために、a) 透明導電層と、

b) 透明導電層の背面に配置された、バインダーとそのバインダー中に埋設された複数の発光粒子とを含んでなる発光層と、

c) 発光層の背面側に配置された、絶縁体粒子を含んでなる絶縁層と、

d) 絶縁層の背面側に配置された背面電極

とを有してなるエレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層の厚さ $T[\mu\text{m}]$ と、前記発光粒子の最大粒径 $D_m[\mu\text{m}]$ との比率( $T/D_m$ )が1.2以上2.0未満であることを特徴とする、エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

#### 【0008】

【発明の実施の形態】(EL素子) まず、作用の面から、本発明のEL素子について説明する。本発明のEL素子では、発光層は、バインダーと、そのバインダー中に埋設された複数の発光粒子とを含んでなり、かつ発光層の厚さ $T[\mu\text{m}]$ と、発光粒子の最大粒径 $D_m[\mu\text{m}]$ との比 $T/D_m$ が1.2以上2.0未満であることを特徴とする。発光層において、発光粒子がバインダー層中に埋設されていることは、発光輝度の実効電力に対する効率(発光効率)を向上させる様に作用する。また、発光層の厚さ $T[\mu\text{m}]$ と、発光粒子の最大粒径 $D_m[\mu\text{m}]$ との比率、 $T/D_m$ が上記範囲であることは、発光効率と発光輝度とを損なうことなく、寿命(輝度半減期:THL)を効果的に高める様に作用する。すなわち、本発明によれば、発光輝度を実用レベル以下に低下させることなく（たとえば、 $50\text{ cd/m}^2$ 以上に維持）、発光効率と寿命とを効果的に高め、これらの3特性が高いレベルでバランスされた実用的なEL素子を提供することができる。この様な観点から、発光層の厚さと発光粒子の最大粒径との比率、 $T/D_m$ は、好適には1.3以上1.8以下の範囲である。

【0009】本発明の好適な形態では、前記発光粒子は、前記絶縁層には実質的に埋設されていない構造を有する。これにより、発光効率をいっそう効果的に高めることができる。この様な作用は次の様に考えられる。たとえば、積層型発光層を有するEL素子では、蛍光体粒子等の発光粒子間の隙間部分に、非常に高誘電率の充填材(絶縁体粒子等)が充填されて、蛍光体間の隙間の静電容量(capacitance)が大きくなる。したがって、①上記隙間部分での誘電損失が大きくなり、また、②ジュール熱の発生による電力損失が生じ、これらにより、発光

効率が悪くなっていた。通常、絶縁体粒子の誘電率は、少なくとも100であり、典型的なチタン酸バリウム等の絶縁効果の比較的高いものでは、1,000以上のものもある。これに対して、EL素子のバインダー(「マトリックス樹脂」とも呼ばれている。)として使用可能な有機ポリマーや高誘電率ポリマーの誘電率は、通常50未満であり、フッ化ビニリデン系樹脂やシアノ系樹脂等の好適な高誘電率ポリマーでも5~30の範囲である。なお、本明細書における「誘電率」は、特に断らない限り1kHzの交流電圧を印加して測定した比誘電率である。

【0010】すなわち、発光粒子の層が絶縁層に実質的に埋設されない様にすれば、蛍光体粒子(発光粒子)間の隙間部分には非常に高誘電率の充填材(絶縁体粒子等)が充填されない。したがって、上記隙間部分での誘電損失の増大と、ジュール熱の発生による電力損失とを可及的に減ずることができ、発光効率を向上させることができる。この様な構造は、たとえば、バインダーと、バインダー中に分散された発光粒子とを含むスラリーからなる塗料を塗布、固化(乾燥や硬化等)して、前記の発光層厚さと発光粒子最大径の比率 $T/D_m$ が、所定の範囲になる様に発光層を形成し、絶縁層と接する発光層の面(背面)から粒子表面が露出しない様にすることにより容易に形成できる。

【0011】本発明の別の好適な形態によるEL素子は、前記透明導電層、前記発光層、前記絶縁層および前記背面電極は、前記透明導電層の長さ方向に沿って連続して延在し、さらに、前記透明導電層の背面に電気的に接続され、前記透明導電層の幅方向寸法よりも小さな幅方向寸法を有し、前記透明導電層の長さ方向に沿って連続して延在する少なくとも1つのバスを含んでなることを特徴とする。上記バスは、前記背面電極とは電気的に接続されていない。これにより、大型発光ディスプレイを形成することが可能なロール状EL素子を形成することが容易になる。また、バスが、発光層と直接的に接続されない(透明導電層を介して電気的に接続されている)場合、大面積のロール状EL素子を形成することがさらに容易になる。これは、発光層の背面の略全面に背面電極を配置することができ、発光層の表面の略全面を発光させることができるからである。たとえば、発光層のエッジ近傍とバスとを直接的に接続することもできるが、この様な場合、バスおよび背面電極が配置されない、発光層背面上の電極未配置部分を、背面電極とバスとを離して(電気的に接続しない様に)配置するために設ける必要がある。この電極未配置部分に対応する、発光層の発光面はほとんど発光することができず、したがって、発光面積を大きくすることが困難になるおそれがある。

【0012】本発明によるEL素子は、いろいろな方法で製造できる。たとえば、次の様にして行うのが好適で

ある。すなわち、

i) 上記透明導電層の背面、および上記絶縁層の表面のいずれか一方の上に、発光層形成用のスラリー塗料を適用し、固化して、上記比率  $T/Dm$  が上記範囲になる様に発光層を形成し、この時、バインダーを含む発光層中に、上記発光粒子をその表面が露出しない様に埋設し、  
ii) 上記発光層の上に、上記透明導電層および上記絶縁層のいずれか他方を配置する、各ステップを含んでなる製造方法である。これにより、発光輝度を実用レベル以下に低下させることなく、発光効率と寿命とを効果的に高められた EL 素子を、生産性良く製造できる。また、大面積のシート状、またはロール状の EL 素子の製造も容易である。

【0013】(EL 素子の構造) 本発明の 1 つの形態による EL 素子 (10) の構造について、図 1 を参照して説明する。図示の例の EL 素子は、透明基材 (7) 上に密着した透明導電層 (1) と、背面電極 (6) と、透明導電層 (1) と背面電極 (6) との間に挟まれた発光層 (2) とを含んでなる。発光層 (2) は、透明導電層 (1) に密着した塗布層である。この塗布層は、バインダー層 (4) と、バインダー層 (4) の中に埋設された発光粒子 (3) の層とを含んでなる。また、図示の例では、背面電極 (6) と絶縁層 (5) とは密着し、その密着面は大略平滑面である。これにより、発光効率と寿命とを効果的に高めることができる。

【0014】また、図示の例では、発光粒子 (3) の層は、バインダーを含んでなるバインダー層 (4) 中に完全に埋設され、絶縁体粒子を含む絶縁層 (5) とは接していないか、または点接触している。すなわち、複数の発光粒子 (3) のうち、大部分のもの (比較的粒径の大きなもの等) は、絶縁層と点接触し、互いに隣接する発光粒子間に絶縁層 (5) は侵入していない。また、絶縁層 (5) および透明導電層 (1) の互いに対向する面は互いに略平行であり、かつ実質的に平滑な面である。これら 2 つの面が平滑な平行面であることは、発光効率を高めるのに有利である。

【0015】さらに、図示の例では、発光粒子 (3) は、絶縁層 (5) 側に配列した第 1 層と、透明導電層 (1) 側に配列した第 2 層とからなる重層を形成しており、この重層内で、複数の発光粒子 (3) は相互に接触している。これにより、発光層 (2) に印加されたエネルギー (電圧) は、それぞれの発光粒子 (3) に均一に与えられるので、輝度を低下させることなく、発光効率と寿命とをいっそう効果的に向上させることができる。また、このような発光粒子の重層が、バインダー層 (4) 内に埋設され、かつ、絶縁層 (5) 及び透明導電層 (1) の両方に近接していることも、発光効率と寿命の向上に非常に有利である。

【0016】EL 素子全体の厚みは、通常 100 ~ 3,000  $\mu m$ 、好適には 120 ~ 2,000  $\mu m$  の範囲で

ある。また、EL 素子の長さは、それがロール状である場合、通常 1 m 以上である。

【0017】一方、ロール状 EL 素子を形成するのに適した構造の EL 素子では、図 1 の様な構造の素子において、透明導電層の発光層未配置部分に、発光層の幅方向寸法よりも大きな幅方向寸法を有する少なくとも 1 つのバスを形成する。発光層未配置部分は、透明導電層の表面積が、発光層の表面積よりも大きく、したがって、発光層を透明導電層の表面に配置した後も、発光層で被覆されていない露出面として形成される。バスは、発光層とは直接的に接続されず、背面電極とは電氣的に接続されていない様にする。この様な形態では、通常バスは、透明基材の幅方向の両端部近傍に配置され、透明基材の長さ方向に沿って延在する背面電極付き発光層と略平行な 2 本のストライプ形状を有する。

【0018】バスは、EL 素子を使用する時、透明導電層に外部から電気 (電圧) を供給するための端子として機能するものであれば、上記の様な形状や配置に限定されない。たとえば、複数の小さなバス (バス部) の組合せからなり、パーコード状に長さ方向に沿って連続して延在するバスや、長さ方向に沿って連続して存在する複数の円形バス部の組合せからなるものでも良い。すなわち、本発明の効果を損なわない限り、長さ方向に沿って小さなバスが不連続に存在していても、全体として連続して延在していれば良い。バスは、例えば背面電極を形成する際にも使用される導電性材料と、適用手段とを用いて形成することができる。適用手段としては、導電性材料を含んでなる塗料の塗布、蒸着、スパッタ等が好適である。

【0019】また、本発明の好適な形態による EL 素子では、前述の様に、発光層は、絶縁層に実質的に埋設されていない。ここで、「絶縁層に実質的に埋設されていない」とは、発光層が、①絶縁層とまったく接していないか、②点接触しているか、または③接していても、隣接する発光粒子間に絶縁体粒子が存在しないように、絶縁層と接触している状態を意味する。上記③の状態には、たとえば、発光層の発光粒子が、絶縁層と点接触している状態が含まれる。さらに、本発明の効果を損なわない範囲において、比較的広い粒子径分布を有する発光粒子を使用し、複数の発光粒子のうち、一部の粒子が絶縁層に埋設しても良い。

【0020】前述の様に、通常、絶縁体粒子の誘電率は、少なくとも 100 であり、これに対して、バインダーの誘電率は、通常 50 未満である。上記の構成によれば、発光粒子は、バインダー層中に埋設され、実質的に絶縁層に埋設されていないので、上記隙間部分の静電容量を効果的に低くすることができる。バインダーとして用いることができるポリマーとしては、たとえば、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-ビニリデンフルオリド共重合体 (THV) 等である。

【0021】(EL素子の製造方法) 本発明のEL素子は、好適には、次の様にして形成することができる。以下の説明における、各構成要素の番号は、図1に示したものである。まず、透明基材(7)の背面に形成された透明導電層(1)の背面に、発光層形成用の塗料を塗布し、塗布した塗料を固化させる。発光層(2)は、高誘電率ポリマー等のバインダーと、そのバインダー中に分散して含まれる発光粒子とを含む塗料(スラリー)を用いて形成するのが良い。この場合、たとえば、バーコート法、カーテンコート法、ダイコート法、グラビアコート法、ロータリーシルキ印刷法等の塗布法を用い、発光粒子の最大粒子径と発光層の厚さとの比率( $T/Dm$ )が、所定の範囲になる様にする。塗料(塗膜)の固化は、通常的手段、たとえば、乾燥、冷却、硬化等が利用できる。続いて、上記発光層(2)の上(背面側)に、絶縁層(5)を配置する。絶縁層は、樹脂と、その樹脂中に分散した絶縁体粒子とを含んでなる絶縁層用の塗料を、バインダー層の背面に塗布、乾燥して形成するのが好適である。最後に、上記絶縁層(5)の背面に背面電極(6)を密着させて、EL素子を完成させる。

【0022】一方、上記とは反対側から作り始める方法、すなわち、最初に背面電極上に形成した絶縁層の平滑化された表面に、発光層を積層し、最後に、透明導電層(または透明導電層付き透明基材)を積層する方法でも良い。

【0023】上記の様な方法によれば、発光効率および寿命が向上した高輝度EL素子を、連続かつ高速で、すなわち生産性良く形成することが特に容易である。たとえば、通常5mpm(m/分)以上、好適には10~200mpm、特に好適には12~100mpmの範囲の塗布速度で生産可能である。

【0024】上記発光層には、発光粒子以外の粒子、たとえば、ガラス、セラミック等の透明ビーズや、着色顔料粒子等を含むこともできる。ただし、粒子全体に含まれる発光粒子の割合は、40体積%以上が好適である。40体積%未満であると、発光輝度が低下するおそれがある。発光輝度、発光効率および寿命は、粒子が発光粒子だけからなる場合に最も向上する。したがって、特に好適な発光粒子の割合は、50~100体積%の範囲である。

【0025】(ロール状EL素子の製造方法) 前述の様に、本発明の好適な形態は、ロール状に形成可能なEL素子を提供する。ロール状EL素子では、長さ方向に連続して延在する透明基材の上に配置される、透明導電層、発光層、絶縁層、背面電極およびバスが、透明基材の長さ方向に沿って連続して延在する。したがって、長さ方向に連続した大面積(平面寸法)の発光層等を有するEL素子を得ることが極めて容易である。すなわち、長さ方向に連続した発光層を有する原反としてのロール状のEL素子を製造し、保管しておき、必要に応じて所

望の長さのEL素子を、その原反から切り取るだけで得ることができる。

【0026】従来のスクリーン印刷を用いた製造では、透明基材の上に配置された、発光層やバス等の積層部分は、長さ方向に沿って不連続にしか形成されない。また、従来のしがつて、スクリーン印刷を用いて製造したEL素子の原反では、上記不連続部分を含まない様な大きさ(長さ)のEL素子しか得ることはできない。これに対して、本発明のロール状のEL素子を原反として

10

のとして使用した場合、前述の様に多様な寸法の製品への応用が極めて容易になる。

【0027】ロール状EL素子は、たとえば、次の1)

2)の各ステップを含んでなる製造方法により製造するのが好適である：

1) 透明導電層が一方の表面に配置された透明基材を用意し、  
2) 前記透明導電層の上に、前記透明導電層の幅方向寸法よりも小さな幅方向寸法を有する様に発光層および絶縁層を配置し、

20

3) 前記発光層付き基材の前記透明導電層の前記発光層が形成されていない残りの露出部分(すなわち、「発光層未配置部分」)に、前記透明基材の長さ方向に沿って、その発光層未配置部分よりも小さな幅方向寸法を有するマスキングを配置し、  
4) 上記発光層付き基材の上に導電性材料を適用し、前記マスキングの介在により、または、前記マスキングが除去された発光層未配置部分の介在により、前記発光層と背面電極とに直接的には接続されていない、前記導電性材料からなるバスと、前記導電性材料からなる背面電極とを形成する。

30

この方法の特徴の1つは、前記発光層および背面電極と、前記バスとが、①前記マスキングの介在により、または②前記マスキングが除去された透明導電層の発光層未配置部分の介在により、互いに直接的に接続しない様に、前記背面電極と前記バスとが形成できる点である。

【0028】この方法において、マスキングは必要に応じて除去すれば良く、前記背面電極と前記バスとが互いに電気的に接続していない限り、除去する必要はない。たとえば、背面電極を形成する第1導電性材料と、バスを形成する第2導電性材料とを、同時に(しかし、別々の適用装置で)、または別のステップにおいて適用し、マスキング上で、2つの導電性材料から形成されたバスと背面電極とが電気的に接続しない様にした場合、マスキングを除去する必要はない。また、発光層とマスキングの厚さが、形成されるバスの厚さに比べて十分に大きく、同時に適用された導電性材料が、バスの部分と背面電極の部分とで、電気的に接続しない様にできる場合も、マスキングを除去する必要はない。しかしながら、好適には、マスキングを除去するのが良い。これによ

40

50

スとが特に容易に形成できるからである。また、上記第 1 および第 2 の導電性材料は、同一の材料であっても、異種の材料であっても良い。しかしながら、好適には、バスと背面電極とは同時に形成するのが良い。製造ステップを容易に簡略化でき、生産性の向上が容易であるからである。

【0029】続いて、本発明において使用される、材料等の構成要素について詳細に説明する。

(透明基材) 透明導電層の支持体として、透明基材を用いるのが好適である。透明基材には、従来の EL 素子に用いられている、ガラス、プラスチックフィルムなどの基材がいずれも使用できる。プラスチックフィルムは、たとえば、ポリエチレンテレフタレート (PET)、ポリエチレンナフタレート (PEN) 等のポリエステル樹脂；ポリメチルメタクリレート、変性ポリメチルメタクリレート等のアクリル樹脂；ポリフッ化ビニリデン、アクリル変成ポリフッ化ビニリデン等のフッ素樹脂；ポリカーボネート樹脂；塩化ビニル系コポリマー等の塩化ビニル樹脂；ポリオレフィン樹脂などである。

【0030】透明基材は、単層フィルムを用いることもできるが、多層フィルムを用いることもできる。たとえば、多層フィルム的一方が、透明性が高く、かつ発光層の発光色と補色の色に発色する染料を含む様にし、光の白色度を高めることができる。このような染料は、発光層の発光色が青緑色である場合、ローダミン 6 G、ローダミン B、ペリレン系染料などの赤色または桃色系の蛍光染料が好ましい。また、これらの染料を樹脂中に分散させて形成した加工顔料も使用できる。透明基材の表裏両面は通常平坦であるが、本発明の効果を損なわない範囲において、透明導電層と接しない表面がブリズム状の凸部を有していても良い。

【0031】透明基材の光透過率は、通常 60% 以上、好適には 70% 以上、特に好適には 80% 以上である。ここで、本明細書における「光透過率」は、日本分光 (株) 製の紫外／可視分光光度計「U best V-560」を使用し、550nm の光を用いて測定された光線透過率を意味する。透明基材の厚みは、ロール状の EL 素子を形成する場合で、通常 10~1,000  $\mu\text{m}$  である。また、本発明の効果を損なわない範囲において、透明基材中に、紫外線吸収剤、吸湿剤、着色剤、蛍光物質、燐光物質等の添加剤を含有させることもできる。

【0032】(透明導電層) 透明導電層は、透明基材の背面に密着する様に配置される。透明導電層には、従来の EL 素子にも用いられている、ITO (インジウム・チン・オキサイド) 膜などの透明電極が使用できる。透明導電層の厚みは、通常 0.01~1,000  $\mu\text{m}$  であり、表面抵抗値は、通常 500  $\Omega/\square$  以下、好適には 1~300  $\Omega/\square$  である。また、光透過率は通常 70% 以上、好適には 80% 以上である。

【0033】ITO 膜は、通常の蒸着、スパッタリング、ペーストの塗布等の製膜手段により形成する。図示の形態では、透明基材の上に直接設けられているが、透明基材の上にプライマー層を設けた後、そのプライマー層の上に ITO 膜を形成しても良い。プライマー層の厚さは、通常 0.1~100  $\mu\text{m}$  である。また、プライマー層の代わりに、透明基材の表面にコロナ処理等の易接着処理を施しても良い。あるいは、発光層の上に ITO 膜を設けた後、その ITO 膜の上に、透明基材を積層することもできる。さらに、仮の基材の離型処理面に設けた ITO 膜を、透明接着剤を介して、透明基材の背面に転写させることもできる。この様な仮の基材として、剥離紙、剥離フィルム、低分子量ポリエチレンフィルム等が使用できる。

【0034】(背面電極) 背面電極は、発光層の背面側 (発光層の絶縁層側) に配置される。図 1 に示される形態では、発光層と直接接する様に配置されている。また、発光層との間に背面電極との接着力を高める等の目的で、接着層を設けることもできる。この接着層の樹脂には、たとえば、後述するバインダーと同様の樹脂を使用する。また、接着層に、絶縁体無機粒子を含有させることもできる。

【0035】背面電極としては、分散型の EL 素子に用いられているアルミニウム、金、銀、銅、ニッケル、クロム等の金属膜；ITO 膜等の透明導電膜；導電性カーボン膜などの導電膜が使用できる。このような導電性膜は、導電性材料を含んでなる塗料の塗布 (バーコーティング、スプレーコーティング、カーテンコーティングなど)、蒸着、スパッタ等の適用手段により設けるのが好適である。金属膜は、たとえば、蒸着膜、スパッタ膜、または金属箔などである。また、背面電極として、上記導電性膜をポリマーフィルム等の支持体上に設けてなる、電極フィルムも使用できる。背面電極の厚みは、通常 5nm~1mm である。また、背面電極も透明導電膜からなり、かつ絶縁層が透明である場合、EL 素子の表裏両面を発光させることが可能である。

【0036】背面電極は、通常は発光層の (すなわち、絶縁層の) 背面全面に連続して配置する。しかしながら、目的に応じて、部分的に設けることもできる。たとえば、長手方向に繰り返して連続するイメージ (図案、文字、記号等) を表す様に形成することができる。これにより、EL 素子を、イメージを表す様に発光させることができる。同様の目的で、発光層を長手方向に繰り返して連続するイメージを表す様に形成しても良い。

【0037】(バインダー) バインダーは、通常、光透過性のポリマーからなる。ポリマーの光透過率は通常 60% 以上、好適には 70% 以上である。また、バインダーとして、高誘電率ポリマーが好適に使用できる。高誘電率ポリマーは、誘電率が通常約 5 以上、好適には 7~25、特に好適には 8~18 の範囲のポリマーである。

誘電率が低すぎると発光輝度が高められないおそれがあり、反対に高すぎると発光効率が高められないおそれがある。高誘電率ポリマーの例は、たとえば、フッ化ビニリデン系樹脂（前述のTHV等）、シアノ系樹脂、ポリビニリデンクロライド系樹脂等をそれぞれ単独で、または2または3以上を混合して使用できる。フッ化ビニリデン系樹脂は、たとえば、フッ化ビニリデンモノマーと、少なくとも1種の他のフッ素系モノマーとの混合物の共重合により得られる。他のフッ素系モノマーは、たとえば、4フッ化エチレン、3フッ化塩化エチレン、6フッ化プロピレン等である。シアノ系樹脂は、たとえば、シアノエチルセルロース、シアノエチル化エチレンービニルアルコール共重合体、シアノエチルブurlan、シアノエチルポリビニルアルコール等である。

【0038】通常、発光層は、発光粒子を含む以外は、バインダーだけからなるが、本発明の効果を損なわない範囲において、バインダーに他の樹脂、充填剤、気泡、中空または中実ガラス微小球、界面活性剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤、防黴剤、防錆剤、吸湿剤、着色剤、燐光物質等の添加剤を含有させることもできる。たとえば、発光粒子の発光色が青緑色である場合、ローダミン6G、ローダミンB、ペリレン系染料などの赤色または桃色系の蛍光染料を含有させることもできる。また、上記他の樹脂は、透明性を損なわない限り、硬化性または粘着性を有していても良い。また、絶縁層側に存在するバインダー部分の誘電率を低くするために、気泡、中空ガラス微小球を充填することもできる。

【0039】（絶縁層）絶縁層は、発光層の絶縁破壊を効果的に防ぐためには必須である。したがって、絶縁層に含まれる絶縁体粒子は、たとえば、従来の分散型EL素子に用いられる、絶縁体無機粒子等の誘電率が100以上の粒子である。上記絶縁層は、通常、樹脂中に、絶縁体粒子を分散させて形成した塗料から形成された塗布層である。絶縁層の樹脂には、バインダー層にも用いられる高誘電率ポリマーが好適である。絶縁体粒子は、たとえば、二酸化チタン、チタン酸バリウム等の無機粒子である。絶縁層は、たとえば、背面電極または発光層上に塗布により設けることができる。

【0040】絶縁層が、絶縁体粒子と高誘電率ポリマーとを含んでなる塗布層である場合、それらの配合割合は、高誘電率ポリマー100質量部（Parts by Weight）に対して、絶縁体粒子が1〜400質量部、好適には10〜350質量部、特に好適には20〜300質量部の範囲である。絶縁体粒子が少なすぎると、絶縁効果が低減し、比較的高い電圧を付加したときに絶縁破壊が生じるおそれがあり、反対に多すぎると、塗料の塗布が困難になるおそれがある。

【0041】絶縁層は、上記材料を含む絶縁層形成用の塗料を塗布し、その塗料を乾燥して形成できる。絶縁層の塗布厚は、乾燥厚が所定の範囲になる様に選ばれる。

絶縁層の乾燥厚みは通常2〜1,000 $\mu$ mである。また、塗料の固形分濃度は、通常5〜70質量%の範囲である。この様な固形分濃度の塗料を用いれば、絶縁層の表面（透明導電層と対向する面）を平滑にすることが容易である。塗料に用いられる溶剤は、絶縁体粒子を均一に溶解またはおよび分散し得る様に、通常の有機溶媒の中から選択される。塗料の調製および塗布には、前述のものが使用できる。乾燥条件は、塗料の溶剤の種類、固形分濃度にもよるが、通常、常温（約25 $^{\circ}$ C）〜150 $^{\circ}$ C、5秒〜1時間の範囲で適宜選ばれる。絶縁層には、絶縁性を損なわない範囲において、充填剤、界面活性剤、酸化防止剤、防黴剤、防錆剤、吸湿剤、着色剤、燐光物質、硬化性樹脂、粘着剤等の添加剤を含有させることもできる。

【0042】（発光層）発光層の発光粒子は、交流電界中に置かれた時に自ら発光する粒子であり、たとえば、従来のEL素子の発光層に用いられている蛍光体粒子が使用できる。蛍光体は、たとえば、ZnS、CdZnS、ZnSSe、CdZnSe等の蛍光化合物の単体、または蛍光化合物にCu、I、Cl、Al、Mn、NdF<sub>3</sub>、Ag、B等の補助成分を添加した複合体からなる。また、粒子化された蛍光体の表面にガラス、セラミックス等の被覆膜を有するものを用いても良い。発光粒子の最大粒子径（Dm）は、通常10〜120 $\mu$ m、好適には20〜100 $\mu$ mである。なお、発光粒子の最大粒子径（直径：Dm）は、顕微鏡観察により1視野に観察されるすべての粒子の直径を測定し、その中で最大のものを、最大粒子径（Dm）とする。なお、1視野に観察され得る粒子数が、通常、約50個になる様に測定する。また、顕微鏡には、通常SEM（走査型電子顕微鏡）を用いるのが良い。発光層の厚みは、前述の比率T/Dmを所定が範囲になる範囲で適宜決定できるが、通常30〜190 $\mu$ mである。

【0043】さらに、発光層は、2種以上の発光粒子を含んでいても良い。たとえば、青、青緑、緑、オレンジなどの色の光を発光し、互いに独立するスペクトルを持つ発光粒子を、少なくとも2種類混合し、白色度の高い発光層を形成することができる。発光層は、発光粒子以外の粒子（ガラス、着色材、燐光物質、ポリマー、無機酸化物等からなる粒子）を1種または2種以上を含有することができる。たとえば、青緑色の光を発光する発光粒子と、その光と補色の関係にある桃色着色材（ローダミン6G、ローダミンB、ペリレン系染料などを含有する粒子等）とを混合し、白色度の高い発光層を形成することができる。

【0044】発光層は、前述の様に、バインダーと、バインダー中に分散された発光粒子とを含んでなるスラリーを塗布して形成した塗膜を、固化して形成する。発光粒子を含む粒子の充填率は、通常60体積%以上、好適に70体積%以上、特に好適には80体積%以上になる

様にする。充填率の低下は、発光輝度および発光効率の低下を招くおそれがあるからである。たとえば、透明導電層が背面に積層された透明基材を用意し、その透明導電層の背面にスラリーを塗布する。この時、透明導電層の背面を、通常は実質的に平滑な面にしておくのが良い。なお、バスを設ける場合、発光層は、透明導電層の幅方向寸法よりも小さな幅方向寸法を有する様に形成される。スラリーが溶剤を含む場合の乾燥条件は、塗料の溶剤の種類、固形分濃度にもよるが、通常、常温（約 25℃）～150℃、5秒～1時間の範囲で適宜選ばれる。また、スラリーの固形分濃度は、比較的高いのが良く、通常 60～97 質量%、好適には 70～95 質量%の範囲である。

【0045】（EL素子の使用方法）本発明のEL素子は、内照式の看板、道路標識、装飾ディスプレイ等の、大型ディスプレイの光源として使用できる。たとえば、光透過性シートの表面に、文字、図案等のイメージを設け、シートの背面とEL素子の発光面とを向かい合う様に配置して使用する。光透過性シートは、たとえば、上記透明基材と同様の素材が使用でき、その光透過率は通常 20%以上である。この時、シートの背面とEL素子の発光面とが密着しているのが好ましい。密着させるためには、光透過性の接着剤を使用する。この様な接着剤は、例えば、アクリル系粘着剤、アクリル系感光性接着剤などである。

【0046】また、光透過性シートを、上記透明基材として用い、光透過性シートの背面に透明導電層を直接設け、その導電層に発光層を積層してEL内蔵型表示体を構成することもできる。さらに、プリズム型再帰性反射シートを光透過性シート（または透明基材）として用い

ることもできる。再帰性反射シートとの組み合わせは、EL内蔵型表示体に、再帰反射性と自発光性能とを合わせ持たせることができる。

【0047】EL素子の発光は、通常、透明導電層上のバスと、背面電極層に設けられ端子に、電源を接続し、素子に電圧を印加して行う。たとえば、乾電池、蓄電池、太陽電池等の電池を使用したり、送電線から供給される交流電流を、インバータ（電圧や周波数の大きさを変えたり、交流一直流間の変換を行う装置）を介してEL素子に供給する。交流周波数は、通常 50～1,000 Hz の範囲である。また、印加電圧は、通常 3～200 V の範囲である。本発明のEL素子は発光効率が高いので、従来の分散型よりも低い電圧（たとえば、100 V 以下）でも十分な明るさ（たとえば、50 cd/m<sup>2</sup> 以上）で発光する。EL素子を屋外で使用する場合、EL素子を、ポリアミド系樹脂等からなる捕水フィルムや、ポリテトラフルオロエチレンフィルム等からなる防湿フィルムにて被覆して用いるのが好ましい。

【0048】本発明のEL素子では、透明基材、バインダー層等の発光粒子からの光の光路に位置する構成部材

に、発光色を調整する目的で、染料、顔料等の着色材を含ませることもできる。また、発光粒子からの光によって励起し、発光粒子からの光とは異なる波長の光を発する、蛍光染料や蛍光顔料を含む波長変換層を、発光粒子からの光の光路に配置することもできる。波長変換層として、蛍光染料や蛍光顔料を含む上記の光路に位置する構成部材も使用できる。

【0049】

【実施例】実施例 1

#### 10 EL素子の形成

本例では、図 1 に示される構造を有する発光層を有するEL素子を形成した。透明基材として、320mm幅、60m長のITO付きPETフィルム（尾池工業（株）製 TCF・KPC300-75A（厚み 75 μm、光透過率 81%））を用いた。このフィルムでは、ロール状で入手したもので、一方の表面に、ITO（インジウム-錫-オキシド）からなる透明導電層がスパッタ法により積層されていた。なお、ITO層の厚みは 50 nm、表面抵抗値は 250 Ω/□であった。

20 【0050】上記透明基材のITO面に、発光層形成用のスラリーを、透明基材の長さ方向に沿って、バーコーターを用いて塗布した。この塗料は、以下の蛍光体からなる発光粒子（300 質量部）を、高誘電率ポリマーからなるバインダー溶液（100 質量部）中に分散させて調製したものであった。

蛍光体粒子：Durel 社製蛍光体粒子、品番：615A

高誘電率ポリマー溶液：3M社製テトラフルオロエチレンヘキサフルオロプロピレンフッ化ビニリデン共重合体「THV200P」（誘電率 10（1 kHz）、光透過率 96%）の 15 質量%溶液（溶剤は酢酸エチル／メチルイソブチルケトン＝1：1）であった。

【0051】上記スラリーの塗膜を、65℃で約 1 分間、引続き 125℃で約 3 分間乾燥し、乾燥厚さ（T）が 48 μm 発光層を形成した。また、前述の方法（顕微鏡観察法）で測定した蛍光体粒子の最大粒径（Dm）は 35 μm であり、比率 T/Dm は 1.37 であった。なお、粒径測定用試料は、発光層に分散したものではなくて、パウダー状蛍光体粒子を用い、倍率 500 倍で観察した。また、ITO面の幅方向の各両端部分に、約 30 mm 幅の露出部分（発光層未配置部分）が形成されるように、発光層の塗布を行った。

【0052】続いて、発光層の背面上に絶縁層形成用の塗料を塗布し、その塗料を乾燥させ、絶縁層を形成した。絶縁層形成用の塗料の組成は、上記 THV200G：チタン酸バリウム：酢酸エチル：メチルイソブチルケトン＝11：26：31：31（重量比）であり、バーコーターで塗布し、前述の発光層の場合と同様の条件で乾燥した。上記チタン酸バリウムは、富士チタン（株）製「HPBT-1」であった。また、乾燥後の発



光層と絶縁層との合計厚さは、 $53\mu\text{m}$ であった。一方、発光層付き透明基材のITO面の発光層未配置部分に、約 $5\text{mm}$ 幅の露出部分が形成される様に、3M社製のアプリケーションテープ「SCPM7Y」（ $18\text{mm}$ 幅）を、透明基材の長さ方向に沿って貼り付けてマスキングした。

【0053】最後に、発光層付き透明基材の被塗布面（発光層、マスキング、および露出されたITO面とからなる面）にアルミニウムを真空蒸着した後、マスキングを除去し、ともにアルミニウム蒸着膜からなる、背面電極とバス（両端部分に2つ）と同時に形成した。これにより、本例のロール状EL素子を得た。アルミニウムの真空蒸着は、真空度（チャンバー内圧力） $3.0\times 10^{-4}\sim 5.0\times 10^{-4}\text{Torr}$ 、ラインスピード $90\text{m/分}$ の条件で行った。

【0054】背面電極と2つのバスとの間には、非蒸着部分が形成され、これらのバスは、発光層および背面電極の両方に電気的に接続されていなかった。また、バスは、長さ方向に連続して延在する、不連続部分を持たないストライプ状バスであった。本例のEL素子において、走査型電子顕微鏡を用いて発光層の断面を観察したところ、互いに隣接する蛍光体粒子間にはバインダーが充填されており、絶縁体粒子は観察されなかった。また、蛍光体粒子が、前記絶縁層側に配列した第1層と、前記透明導電層側に配列した第2層とからなる重層を形成し、この重層内で、複数の発光粒子が相互に接触しているのが確認された。この様にして、発光粒子の層がバインダー層中に完全に埋設され、絶縁層には実質的に埋設しない様に、発光層が形成できた。また、絶縁層および透明導電層の互いに対向する面は互いに略平行であり、かつ実質的に平滑な面であった。

#### 【0055】EL素子の発光

この様にして得られたロール状EL素子（原反）から、矩形状EL素子を切り取り、背面電極とバス間に $100\text{V}$ 、 $400\text{Hz}$ の交流電圧を印加して、EL素子を発光させたところ、発光面全体にわたり均一な発光が得られた。なお、上記矩形状EL素子の発光面の平面寸法は、 $100\text{mm}$ （たて） $\times 100\text{mm}$ （横）であった。EL素子を発光させるために、ITO面と背面電極間に、電源装置（菊水電子工業（株）製「PCR500L」）を接続し、 $100\text{V}$ 、 $400\text{Hz}$ の正弦波を印加した。輝度計（ミノルタ（株）製「LS110」）を用い、発光時の実効電力 $P[\text{W}]$ および輝度 $L[\text{cd}/\text{m}^2]$ を暗室内にて測定し、発光輝度および発光効率 $\eta[\text{lm}/\text{W}]$ を前掲の式（1）を用いて算出した。その結果、発光輝度は $51\text{cd}/\text{m}^2$ 、発光効率は $3.3\text{lm}(\text{ルーメン})/\text{W}$ であった。また、同じ条件で連続駆動したところ、輝度半減期（THL）は $1000$ 時間以上であった。

【0056】（実施例2）蛍光体粒子の量を $600$ 質量部に変更した以外は、実施例1と同様にして本例のEL

素子を作製した。発光層の乾燥厚さ（ $T$ ）は $52\mu\text{m}$ であり、比率 $T/D_m$ は $1.48$ であった。また、実施例1と同様にして測定した発光輝度は $51\text{cd}/\text{m}^2$ 、発光効率は $3.9\text{lm}(\text{ルーメン})/\text{W}$ であった。また、同じ条件で連続駆動したところ、輝度半減期は $880$ 時間であった。

【0057】（実施例3）バインダー（THV）溶液の濃度を $10$ 質量%に、蛍光体粒子の量を $1200$ 質量部にそれぞれ変更した以外は、実施例1と同様にして本例のEL素子を作製した。発光層の乾燥厚さ（ $T$ ）は $53\mu\text{m}$ であり、比率 $T/D_m$ は $1.51$ であった。また、実施例1と同様にして測定した発光輝度は $56\text{cd}/\text{m}^2$ 、発光効率は $3.7\text{lm}(\text{ルーメン})/\text{W}$ であった。また、同じ条件で連続駆動したところ、輝度半減期は $860$ 時間であった。

【0058】（比較例1）バインダー（THV）溶液の濃度を $10$ 質量%に変更した以外は、実施例1と同様にして本例のEL素子を作製した。発光層の乾燥厚さ（ $T$ ）は $34\mu\text{m}$ であり、比率 $T/D_m$ は $0.97$ であった。なお、本例のEL素子の発光層断面を、走査型電子顕微鏡にて観察したところ、蛍光体粒子が実質的に単層を形成しているのが確認された。また、実施例1と同様にして測定した発光輝度は $70\text{cd}/\text{m}^2$ 、発光効率は $1.9\text{lm}(\text{ルーメン})/\text{W}$ であった。また、同じ条件で連続駆動したところ、輝度半減期は $630$ 時間であった。

【0059】（比較例2）バインダー（THV）溶液の濃度を $10$ 質量%に、蛍光体粒子の量を $900$ 質量部にそれぞれ変更した以外は、実施例1と同様にして本例のEL素子を作製した。発光層の乾燥厚さ（ $T$ ）は $39\mu\text{m}$ であり、比率 $T/D_m$ は $1.11$ であった。なお、本例のEL素子の発光層断面を、走査型電子顕微鏡にて観察したところ、蛍光体粒子が実質的に単層を形成しているのが確認された。また、実施例1と同様にして測定した発光輝度は $81\text{cd}/\text{m}^2$ 、発光効率は $1.31\text{lm}(\text{ルーメン})/\text{W}$ であった。また、同じ条件で連続駆動したところ、輝度半減期は $460$ 時間であった。

#### 【0060】

【発明の効果】本発明によれば、発光輝度を低下させることなく、発光効率及び寿命が効果的に改良されたEL素子を提供できる。本発明によるEL素子では、たとえば、発光輝度を $50\text{cd}/\text{m}^2$ 以上に維持しつつ、発光効率を $3\text{ルーメン}/\text{W}$ 以上に、かつ寿命（輝度半減期）を $700$ 時間以上に向上させることができる。

#### 【図面の簡単な説明】

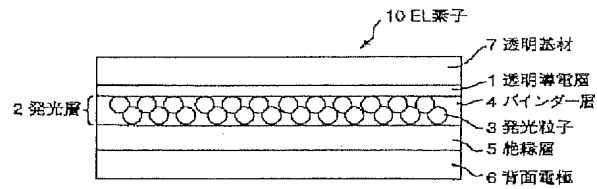
【図1】 本発明の1つの形態によるEL素子の断面図である。

#### 【符号の説明】

1：透明導電層、2：発光層、3：発光粒子、4：バインダー層、5：絶縁層、6：背面電極、7：透明基材、

10: EL素子

【図1】



フロントページの続き

(72)発明者 関口 真

神奈川県相模原市南橋本3-8-8 住友  
スリーエム株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB11 CA06 CB01  
GC01 DA05 DB02 DC01 EA02  
EB04 FA01

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-284053

(43)Date of publication of application : 12.10.2001

(51)Int.Cl.

H05B 33/20

(21)Application number : 2000-097403

(71)Applicant : THREE M INNOVATIVE PROPERTIES CO

(22)Date of filing : 31.03.2000

(72)Inventor : ABE HIDETOSHI  
ARAKI YOSHINORI  
SEKIGUCHI MAKOTO

## (54) ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

### (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an electroluminescent element without lowering brightness, for example, keeping 50 cd/m<sup>2</sup> or more, with effectively improved luminous efficiency and life.

SOLUTION: The electroluminescent element is composed of a transparent conductive layer, a binder formed at the back of the transparent conductive layer, a luminous layer including a number of luminous particles buried in the binder, an insulation layer including particles of insulation material formed at the back of the luminous layer, and a back surface electrode formed at the back of the insulation layer. The ratio of the thickness of the luminous layer T [ $\mu$ m] to the maximum diameter of the luminous particle Dm [ $\mu$ m]; (T/Dm) is 1.2 or more and less than 2.0.

